



1712

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

FAX RECEIVED  
JUL 03 2001  
GROUP 1700

In re Application of: Toui, et al.

Art Unit: 1712

Serial No.: 09/851,983

Examiner: To Be Assigned

Filed: May 9, 2001

Atty. Docket: 0261-0008

For: Top Coating Composition

4 4

**CLAIM FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. § 119 IN UTILITY APPLICATION**

Honorable Commissioner of  
Patents and Trademarks  
Washington, D.C. 20231

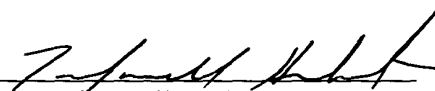
Sir:

Priority under 35 U.S.C. § 119 is hereby claimed to the following priority document(s), filed in a foreign country within one (1) year prior to the filing of the above-referenced United States utility patent application (35 U.S.C. § 172):

| Country | Priority Document Appl. No. | Filing Date |
|---------|-----------------------------|-------------|
| Japan   | 2000-135548                 | May 9, 2000 |
|         |                             |             |

A certified copy of each listed priority document is submitted herewith. Prompt acknowledgment of this claim and submission is respectfully requested.

Respectfully submitted,  
SHANKS & HERBERT

  
Toni-Junell Herbert  
Reg. No.: 34,348

Date: June 28, 2001

TransPotomac Plaza  
1033 N. Fairfax Street, Suite 306  
Alexandria, VA 22314

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE



RECEIVED  
JUL 03 2001  
TC 1700

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日

Date of Application:

2000年 5月 9日

出願番号

Application Number:

特願2000-135548

出願人

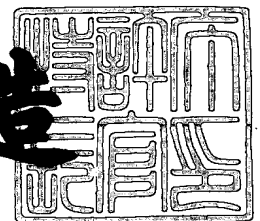
Applicant(s):

日本ペイント株式会社

2001年 5月11日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2001-3039871

【書類名】 特許願

【整理番号】 99-00137

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 B05D 7/14

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府寝屋川市池田中町 1 9 番 1 7 号 日本ペイント株式会社内

【氏名】 東井 輝三

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府寝屋川市池田中町 1 9 番 1 7 号 日本ペイント株式会社内

【氏名】 田辺 久記

【発明者】

【住所又は居所】 広島県広島市南区仁保沖町 1 番 3 0 号 日本ペイント株式会社内

【氏名】 須藤 伸久

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府寝屋川市池田中町 1 9 番 1 7 号 日本ペイント株式会社内

【氏名】 浦野 哲

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府寝屋川市池田中町 1 9 番 1 7 号 日本ペイント株式会社内

【氏名】 吉岡 学

【特許出願人】

【識別番号】 000230054

【氏名又は名称】 日本ペイント株式会社

【代表者】 藤井 浩

【代理人】

【識別番号】 100086586

【弁理士】

【氏名又は名称】 安富 康男

【選任した代理人】

【識別番号】 100104813

【弁理士】

【氏名又は名称】 古谷 信也

【選任した代理人】

【識別番号】 100108431

【弁理士】

【氏名又は名称】 村上 加奈子

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 033891

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9705385

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

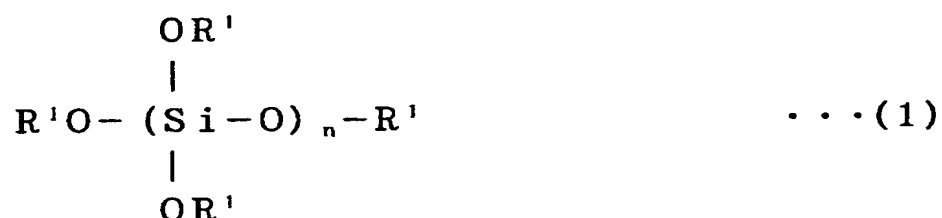
【発明の名称】 上塗り用塗料組成物

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 塗膜形成性樹脂（Ⅰ）と、シリケート化合物（ⅠⅠ）及び加水分解性シリル基含有樹脂（ⅠⅠⅠ）および／または加水分解性シリル基含有樹脂（ⅠⅠⅠ）にシリケート化合物（ⅠⅠ）をグラフトしてなるシリケートグラフト樹脂（ⅠⅣ）とを含有する上塗り用塗料組成物。

【請求項 2】 前記シリケート化合物（ⅠⅠ）は、一般式（1）；

【化 1】



〔式中、nは、1～30の整数を表す。R<sup>1</sup>のうち少なくとも一つは、R<sup>2</sup> - (O - CH<sub>2</sub> - CHR<sup>3</sup>)<sub>m</sub> - (R<sup>2</sup>は炭素数1～8のアルキル基、フェニル基またはベンジル基であり、R<sup>3</sup>は水素またはメチル基であり、mは1～4の整数)で表される有機基であり、残りのR<sup>1</sup>はメチル基またはエチル基である。〕  
で表される変性シリケート化合物であることを特徴とする請求項 1 記載の上塗り用塗料組成物。

【請求項 3】 前記加水分解性シリル基含有樹脂（ⅠⅠⅠ）が、シラノール基および／または加水分解性シリル基含有ラジカル重合性単量体（ⅠⅠⅠ - a）、水酸基含有ラジカル重合性単量体（ⅠⅠⅠ - b）およびその他のラジカル重合性単量体（ⅠⅠⅠ - c）をラジカル重合させて得られるアクリル樹脂であることを特徴とする請求項 1 または 2 記載の上塗り用塗料組成物。

【請求項 4】 前記塗膜形成性樹脂（Ⅰ）が、水酸基含有樹脂とポリイソシアネート化合物とを含有することを特徴とする請求項 1 乃至 3 のいずれか一つに記載の上塗り用塗料組成物。

【発明の詳細な説明】

【 0 0 0 1 】

【発明の属する技術分野】

本発明は、塗料組成物に関するものであり、特に自動車上塗り塗料用の塗料組成物として適した塗料組成物に関するものである。

【 0 0 0 2 】

【従来の技術】

従来より、建築物用、土木用、自動車用などにおいて耐汚染性に優れた塗料として、超疎水性を有するフッ素樹脂系塗料が知られている。このような超疎水性のフッ素樹脂系塗料では、その表面に水が付着しにくいため、汚れが付着しにくいと考えられていた。

【 0 0 0 3 】

しかしながら、実際に屋外に暴露すると、大気中の汚れが付着し易く、また雨筋汚れが付着し堆積し易いという問題があった。このため塗膜表面を親水性にする耐汚染性塗膜の形成方法として、国際公開W O 9 4 / 0 6 8 7 0 号公報では、メチルシリケートやエチルシリケートなどのオルガノシリケートを上塗り塗料中に配合し、この上塗り塗料を塗布した後、塗膜表面を酸処理することにより水に対する接触角を70度以下にする塗膜形成方法が提案されている。

【 0 0 0 4 】

しかしながら、このような塗料であっても耐汚染性は不十分であり、耐汚染性効果を高めるためにシリケート配合量を増量すると、塗装時の環境条件により以下の問題が発生することがある。例えば、湿度80%以上のような高湿度条件下ではセッティング時あるいは焼き付け時に、塗膜のワレ等の外観異常が起こったり、逆に、湿度60%以下のような低湿度条件下では、得られた塗膜が白濁したり、耐水性試験後に白化が見られたりした。

【 0 0 0 5 】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、上述の現状に鑑み、塗装時の湿度環境にかかわらず外観に優れた塗膜が得られ、耐候性、耐汚染性に優れた上塗り用塗料組成物を提供することを目的とするものである。

【 0 0 0 6 】

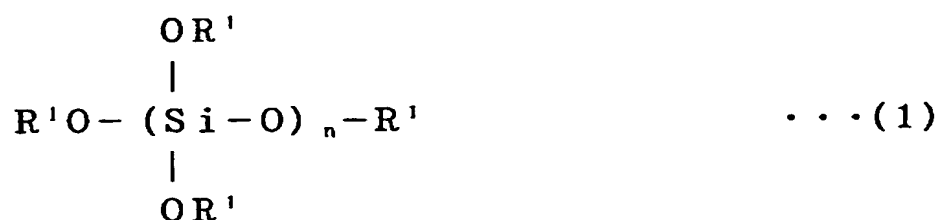
【課題を解決するための手段】

本発明は、塗膜形成性樹脂（Ⅰ）と、シリケート化合物（ⅠⅠ）及び加水分解性シリル基含有樹脂（ⅠⅠⅠ）および／または加水分解性シリル基含有樹脂（ⅠⅠⅠ）にシリケート化合物（ⅠⅠ）をグラフトしてなるシリケートグラフト樹脂（ⅠⅣ）とを含有する上塗り用塗料組成物を提供するものである。

本発明はまた、上記シリケート化合物（ⅠⅠ）は、一般式（１）；

【 0 0 0 7 】

【化 2】



【 0 0 0 8 】

〔式中、 $n$ は、 $1 \sim 30$ の整数を表す。 $\text{R}^1$ のうち少なくとも一つは、 $\text{R}^2 - (\text{O} - \text{CH}_2 - \text{CHR}^3)_m -$ （ $\text{R}^2$ は炭素数 $1 \sim 8$ のアルキル基、フェニル基またはベンジル基であり、 $\text{R}^3$ は水素またはメチル基であり、 $m$ は $1 \sim 4$ の整数）で表される有機基であり、残りの $\text{R}^1$ はメチル基またはエチル基である。〕

で表される変性シリケート化合物であることを特徴とする上塗り用塗料組成物をも提供するものでもある。

【 0 0 0 9 】

本発明はまた、上記加水分解性シリル基含有樹脂（ⅠⅠⅠ）が、シラノール基および／または加水分解性シリル基含有ラジカル重合性単量体（ⅠⅠⅠ-a）、水酸基含有ラジカル重合性単量体（ⅠⅠⅠ-b）およびその他のラジカル重合性単量体（ⅠⅠⅠ-c）をラジカル重合させて得られるアクリル樹脂であることを特徴とする上塗り用塗料組成物を提供するものでもある。

【 0 0 1 0 】

本発明はまた、上記塗膜形成性樹脂（Ⅰ）が、水酸基含有樹脂とポリイソシア

ネット化合物とを含有することを特徴とする上塗り用塗料組成物をも提供するものである。

以下に本発明を詳述する。

【0011】

【発明の実施の形態】

本発明の上塗り用塗料組成物は、塗膜形成性樹脂（Ⅰ）と、シリケート化合物（ⅠⅠ）及び加水分解性シリル基含有樹脂（ⅠⅠⅠ）および／または加水分解性シリル基含有樹脂（ⅠⅠⅠ）にシリケート化合物（ⅠⅠ）をグラフトしてなるシリケートグラフト樹脂（ⅠⅤ）とを含有する。

【0012】

上記塗膜形成性成分（Ⅰ）としては、有機溶剤に溶解し、かつ反応硬化型のものが挙げられる。このような塗膜形成性成分としては、水酸基含有樹脂と硬化剤とを含有するものが好ましい。

【0013】

上記水酸基含有樹脂としては、特に限定されず、例えば、アクリル樹脂、ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、ウレタン樹脂等の塗膜形成性樹脂が挙げられるが、これらの中でも、塗膜性能及び耐候性の観点から、水酸基含有アクリル樹脂が好ましい。

【0014】

上記水酸基含有アクリル樹脂は、水酸基含有ラジカル重合性単量体およびその他のラジカル重合性単量体をラジカル重合させて得られる。この水酸基含有ラジカル重合性単量体としては特に限定されず、例えば、（メタ）アクリル酸-2-ヒドロキシエチル、（メタ）アクリル酸-4-ヒドロキシブチル、（メタ）アクリル酸ヒドロキシプロピル、ブラクセルFM-1（商品名、ダイセル社製）等が挙げられる。これらは単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

【0015】

上記その他のラジカル重合性単量体としては特に限定されず、例えば、スチレン、 $\alpha$ -メチルスチレン等のスチレン類；（メタ）アクリル酸メチル、（メタ）アクリル酸エチル、（メタ）アクリル酸プロピル、（メタ）アクリル酸-n、i



及び  $\epsilon$ -ブチル、(メタ)アクリル酸-2-エチルヘキシル、(メタ)アクリル酸ラウリル、グリシジル(メタ)アクリレート等の(メタ)アクリル酸エステル類；アクリルアミド、メタクリルアミド等のアミド類等が挙げられる。これらは単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

#### 【0016】

上記共重合方法としては特に限定されず、例えば、通常のラジカル重合等の溶液重合等により行うことができる。上記樹脂の数平均分子量( $M_n$ )は、1000～100000、特に2000～30000が好ましい。上記数平均分子量( $M_n$ )が1000未満であると、塗膜の耐候性が低下する恐れがあり、10000を超えると、樹脂の粘度が高くなり塗装作業性が低下するほか、硬化剤やシリケート化合物との相溶性の低下により塗膜の外観不良を引き起こす恐れがある。なお、本明細書において、数平均分子量( $M_n$ )は、GPC(ゲルパーミエーションクロマトグラフィー)で測定したポリスチレン換算の数平均分子量である。

#### 【0017】

上記水酸基含有樹脂の水酸基価は、10～200であることが好ましく、30～170であることが更に好ましい。水酸基が下限未満では硬化性が十分でなくなり、水酸基価が上限を越えると塗膜の可とう性が低下する。

#### 【0018】

上記水酸基含有樹脂は、硬化剤と共に用いられる。このような硬化剤としては、ポリイソシアネート化合物が挙げられる。ポリイソシアネート化合物は、例えば、2,4-トリレンジイソシアネート、ジフェニルメタン-4,4'-ジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート、リジンメチルエステルジイソシアネート、メチルシクロヘキシルジイソシアネート、トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート、 $n$ -ペンタン-1,4-ジイソシアネート、これらの三量体、これらのアダクト体やピュウレット体、これらの重合体で2個以上のイソシアネート基を有するもの、さらに各種アルコールで一部のイソシアネート基を反応させて変性したものなどが挙げられるが、これらに限定されるものではない。

## 【0019】

ポリイソシアネート化合物と水酸基含有樹脂との混合割合はNCO/OH（モル比）で0.5～1.5が好ましく、さらに0.8～1.2が好ましい。配合割合が上記の範囲から外れると、塗膜の耐候性、耐水性、耐溶剤性などが低下するので好ましくない。

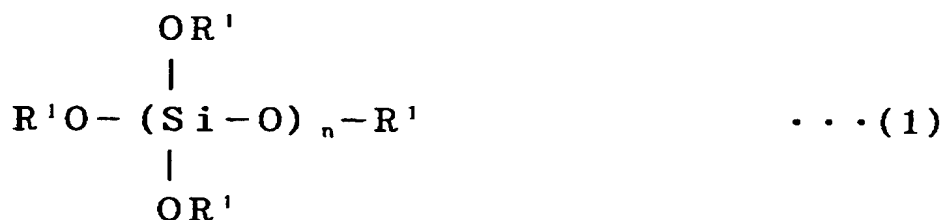
## 【0020】

本発明の上塗り用塗料組成物における上記塗膜形成性樹脂（I）の配合量は、樹脂成分全量に対し10～98重量%で、特に10～70重量%が好ましい。上記塗膜形成性樹脂（I）の配合量が10重量%未満であると、塗膜の耐候性、耐水性及び耐溶剤性が低下する。98重量%を超えると、耐汚染性が不十分である。なお、上記重量%は、固形分換算の値である。

本発明の上塗り用塗料組成物に含まれるシリケート化合物（II）は、一般式（1）；

## 【0021】

## 【化3】



## 【0022】

[式中、nは、1～30の整数を表す。R<sup>1</sup>のうち少なくとも一つは、R<sup>2</sup> - (O-CH<sub>2</sub>-CHR<sup>3</sup>)<sub>m</sub> - (R<sup>2</sup>は炭素数1～8のアルキル基、フェニル基またはベンジル基であり、R<sup>3</sup>は水素またはメチル基であり、mは1～4の整数)で表される有機基であり、残りのR<sup>1</sup>はメチル基またはエチル基である。]で表される変性シリケート化合物が好ましい。

## 【0023】

上記nが30を越えると樹脂の相溶性が低下して塗膜が白濁したり、塗膜表面の平滑性が低下する。更に、後述する加水分解性シリル基含有樹脂（III）と

グラフトしてなるシリケートグラフト樹脂（I V）が白濁し透明にならなくなる。 $n$ は、2～30であることが好ましく、5～20であることが更に好ましい。

## 【0024】

上記炭素数1～8の有機基は、シリケート化合物（I I）あるいはシリケート化合物（I I）をグラフトしてなるシリケートグラフト樹脂（I V）が、塗装時にウェットな塗膜中で塗膜表面に展開して塗膜表面近傍に多く存在しやすくする、即ち、適度に他の樹脂成分との相溶性を少なくするとの観点から、炭素数が1～6のものが好ましい。

## 【0025】

上記シリケート化合物（I I）の具体例としては、テトラメトキシシラン、テトラエトキシシラン、テトラ- $n$ -プロポキシシラン、テトラ- $i$ -プロポキシシラン、テトラ- $n$ -ブトキシシラン、テトラ- $s$ -ブトキシシラン、テトラ- $t$ -ブトキシシラン、テトラ- $n$ -ペントキシシラン、テトラ- $i$ -ペントキシシラン、テトラネオペントキシシラン等；それらの1種又は2種以上の縮合物等が挙げられる。

## 【0026】

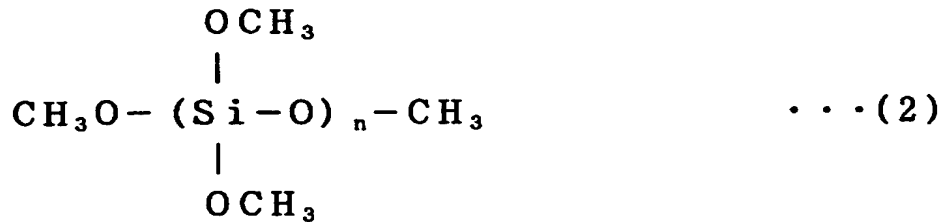
また、特に好ましい変性シリケート化合物（I I）は、下記式（2）で表されるメチルシリケート及び／若しくはその縮合物、又は、下記式（3）で表されるエチルシリケート及び／若しくはその縮合物を反応基質として、アルコール交換反応させて得ることができる。

## 【0027】

この場合、上記シリケート化合物（I I）は、メチルシリケート及び／若しくはその縮合物、又は、エチルシリケート及び／若しくはその縮合物のメチル基又はエチル基の一部が、アルコール交換反応により変性された変性シリケート化合物である。

## 【0028】

【化 4】

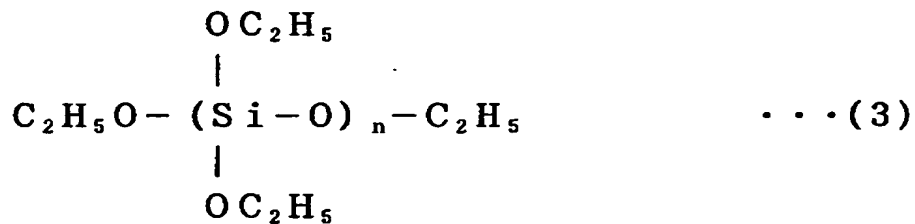


【0 0 2 9】

上記式中、n は、上述したものと同様である。

【0 0 3 0】

【化 5】



【0 0 3 1】

上記式中、n は、上述したものと同様である。

上記メチルシリケート及び／又はその縮合物としては特に限定されず、例えば、「MKCシリケート MS-51」、「MKCシリケート MS-56」、「MKCシリケート MS-60」（いずれも商品名、三菱化学社製）等の市販品が挙げられる。

【0 0 3 2】

上記エチルシリケート及び／又はその縮合物としては特に限定されず、例えば、「エチルシリケート40」、「エチルシリケート48」、「エチルシリケート28」（いずれも商品名、コルコート社製）等の市販品が挙げられる。

上記アルコール交換反応は、上記メチルシリケート及び／若しくはその縮合物、又は、上記エチルシリケート及び／若しくはその縮合物を反応基質として、アルコール化合物を反応試剤として反応させることにより行う。

【0 0 3 3】

上記アルコール化合物としては、メチルセロソルブ、エチルセロソルブ、ブチルセロソルブ、ヘキシルセロソルブ、ブチルジグリコール、プロピレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノエチルエーテル、プロピレングリコールモノプロピルエーテル、プロピレングリコールモノブチルエーテル等のエーテルアルコール化合物等が挙げられる。これらは単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

## 【 0 0 3 4 】

上記アルコール交換反応の際にはアルコール交換触媒を用いてもよい。上記アルコール交換触媒としては特に限定されず、例えば、酸又は塩基が挙げられる。上記酸としては特に限定されず、例えば、塩酸、硫酸、磷酸、スルホン酸等のブレンステッド酸；有機スズ化合物等のルイス酸等が挙げられる。上記塩基としては特に限定されず、例えば、トリエチルアミン、ジイソプロピルエチルアミン、ジメチルベンジルアミン、ジアザビスクロ〔2, 2, 2〕オクタン、1, 8-ジアザビスクロ〔5, 4, 0〕ウンデセン-7等の第3級アミン等が挙げられる。これらは単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

## 【 0 0 3 5 】

上記アルコール交換反応の際の溶媒は、特に使用しなくてもよいが、例えば、反応試剤であるアルコール化合物を溶媒として、上記反応基質に対して過剰に用いてもよい。

上記溶媒としては特に限定されず、例えば、トルエン、ベンゼン、キシレン等の芳香族炭化水素；ジクロロエタン等のハロゲン化炭化水素；THF、ジオキサン等のエーテル類；メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等のケトン類；酢酸エチル、酢酸ブチル等のエステル類；ジメチルカーボメート、アセトニトリル等が挙げられる。これらは単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

## 【 0 0 3 6 】

上記溶媒の使用量としては特に限定されず、例えば、反応基質であるメチルシリケート及び／若しくはその縮合物、又は、エチルシリケート及び／若しくはその縮合物と反応試剤であるアルコール化合物との合計重量に対して、10倍量以

下であることが好ましい。

【0037】

上記アルコール交換反応の際の反応基質であるメチルシリケート及び／又はその縮合物、又は、エチルシリケート及び／若しくはその縮合物と反応試剤であるアルコール化合物との割合としては特に限定されず、例えば、アルコール化合物が反応基質に対して少なくとも1モル%以上で、変性に必要な量又はそれ以上の量となるようにすればよい。

【0038】

上記アルコール交換反応は、変性によって生成するメタノールまたはエタノールを、アゼオトロピックに留去して行ってもよい。

上記アルコール交換反応の反応条件は特に限定されず、反応温度としては一般に、0℃～200℃である。反応時間は、例えば、24時間以内であることが好ましい。反応時の圧力としては、一般に、常圧であるが、必要に応じて、生成するメタノールを留去するために減圧下で行ってもよい。

【0039】

上記アルコール交換反応における反応率は、生成したメタノールの量の測定、NMRスペクトル又はGC（ガスクロマトグラフィー）分析等により調べることができる。上述したようにして得られる生成物は、一般に、無色～薄黄色の油状物質である。

【0040】

本発明の上塗り用塗料組成物に含まれる加水分解性シリル基含有樹脂（III）は、シラノール基および／または加水分解性シリル基含有ラジカル重合性単量体（III-a）、水酸基含有ラジカル重合性単量体（III-b）およびその他のラジカル重合性単量体（III-c）をラジカル重合させて得られるアクリル共重合体である。

【0041】

上記加水分解性シリル基含有樹脂（III）は、シラノール基および／または加水分解性シリル基含有ラジカル重合性単量体（III-a）5～50重量%、水酸基含有ラジカル重合性単量体（III-b）3～50重量%、およびその他

のラジカル重合性単量体（ⅠⅠⅠ－c）20～50重量%からなる単量体成分をラジカル重合させて得ることができる。

## 【0042】

上記シラノール基および／または加水分解性シリル基含有ラジカル重合性単量体（ⅠⅠⅠ－a）量が下限未満では高湿度条件下で塗膜ワレが発生する恐れがあり、上限を越えると塗膜の可とう性が低下する。好ましくは10～30重量%である。

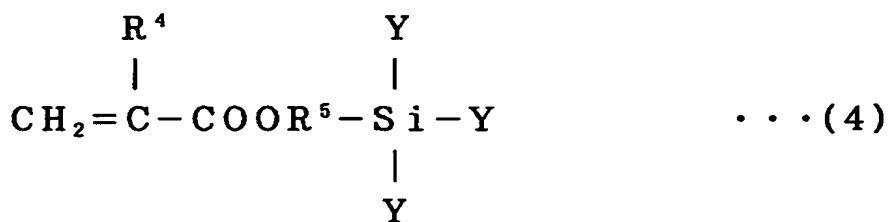
## 【0043】

上記水酸基含有ラジカル重合性単量体（ⅠⅠⅠ－b）量が、下限未満では塗膜硬度及び耐溶剤性が低下する恐れがあり、上限を越えると塗膜の可とう性が低下する。好ましくは10～40重量%である。水酸基価は、10～200であることが好ましく、30～170であることが更に好ましい。水酸基価が下限未満では硬化性が十分でなく、更にシリケート化合物とのグラフト化が進行しにくく、シリケートグラフト樹脂が濁る。水酸基価が上限を越えると塗膜の可とう性が低下する。

上記シラノール基および／または加水分解性シリル基含有ラジカル重合性単量体（ⅠⅠⅠ－a）は、一般式（4）；

## 【0044】

## 【化6】



## 【0045】

（式中、 $\text{R}^4$ は水素またはメチル基を表し、 $\text{R}^5$ は炭素数1～6の炭化水素基を示し、Yは同一または異なって、水酸基、炭素数1～4のアルコキシル基もしくは炭素数1～8の脂肪族炭化水素基を示す。）で表される。上記 $\text{R}^5$ の炭素数1～6の炭化水素基としては、直鎖状又は分枝状の2価のアルキレン基、アルケニ

レン基、アリーレン基等を挙げることができる。上記 Y で表される脂肪族炭化水素基としてはアルキル、アリアル、アラルキルが挙げられ、このアルキル、アラルキル及び上記のアルコキシとしては、直鎖又は分枝状であってよい。

## 【0046】

上記一般式 (4) で表されるシラン基含有モノマーの具体例としては、例えば、 $\gamma$ -(メタ)アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -(メタ)アクリロキシプロピルトリエトキシシラン、 $\gamma$ -(メタ)アクリロキシプロピルトリプロポキシシラン、 $\gamma$ -(メタ)アクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、 $\gamma$ -(メタ)アクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、 $\gamma$ -(メタ)アクリロキシプロピルメチルジプロポキシシラン、 $\gamma$ -(メタ)アクリロキシブチルフェニルジメトキシシラン、 $\gamma$ -(メタ)アクリロキシブチルフェニルジエトキシシラン、 $\gamma$ -(メタ)アクリロキシブチルフェニルジプロポキシシラン、 $\gamma$ -(メタ)アクリロキシプロピルジメチルメトキシシラン、 $\gamma$ -(メタ)アクリロキシプロピルジメチルエトキシシラン、 $\gamma$ -(メタ)アクリロキシプロピルフェニルメチルメトキシシラン、 $\gamma$ -(メタ)アクリロキシプロピルフェニルメチルエトキシシラン、 $\gamma$ -(メタ)アクリロキシプロピルトリシラノール、 $\gamma$ -(メタ)アクリロキシプロピルメチルジヒドロキシシラン、 $\gamma$ -(メタ)アクリロキシブチルフェニルジヒドロキシシラン、 $\gamma$ -(メタ)アクリロキシプロピルジメチルヒドロキシシラン、 $\gamma$ -(メタ)アクリロキシプロピルフェニルメチルヒドロキシシラン等が挙げられる。

## 【0047】

上記水酸基含有ラジカル重合性単量体 (III-b) 及びその他のラジカル重合性単量体 (III-c) としては特に限定されず、例えば、アクリル樹脂の記載で挙げたものが挙げられる。これらは単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

## 【0048】

上記加水分解性シリル基含樹脂 (III) は、上述したラジカル重合性単量体成分をラジカル重合開始剤により共重合して得られる。上記共重合方法としては特に限定されず、通常のラジカル重合等の溶液重合等により行うことができ、例



例えば、重合温度 1 0 0 ~ 1 4 0 ℃、重合時間 3 ~ 8 時間で行うことができる。

【 0 0 4 9 】

上記ラジカル重合開始剤としては特に限定されず、例えば、*t*-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、ジメチル-2, 2'-アゾビスイソブチレート等が挙げられる。これらは単独で用いてもよく、2 種以上を併用してもよい。上記ラジカル重合開始剤は、上述した単量体の全量に対して、3 ~ 1 5 重量%使用するのが好ましい。上記共重合には、添加剤として連鎖移動剤等を添加してもよい。

【 0 0 5 0 】

上記加水分解性シリル基含有樹脂 (I I I) は、数平均分子量 ( $M_n$ ) が 1 0 0 0 ~ 8 0 0 0 であり、分子中に加水分解性シリル基を 1 ~ 1 0 個有し、水酸基を 2 ~ 1 2 個有する。水酸基価としては 5 ~ 2 0 0 m g K O H / g である。上記加水分解性シリル基含有樹脂 (I I I) の数平均分子量 ( $M_n$ ) が 1 0 0 0 未満では塗膜の耐水性が低下し、8 0 0 0 を越えると塗膜外観 (肌) が低下し、加水分解性シリル基が分子中に 1 個未満であるとシリケート化合物 (I I) とのグラフト化が進行せず、グラフト共重合体が濁ったままとなり、得られる塗膜ポリッシュ部の耐汚染性も低下する。1 0 個を越えると、得られる硬化塗膜が硬くなりすぎ、耐候性が低下する恐れがある。上記水酸基価が 5 m g K O H / g 未満であると、密着性が劣り、2 0 0 m g K O H / g を超えると、硬化塗膜の耐水性が充分でなくなる。

【 0 0 5 1 】

更に好ましくは、分子中にエポキシ基を 2 ~ 1 0 個有し、エポキシ当量が 1 0 0 ~ 8 0 0 である。上記エポキシ当量が 1 0 0 未満であると、硬化塗膜が硬くなりすぎ、耐候性が悪くなり、8 0 0 を超えると、塗料の硬化性が充分でなくなる。特に好ましくは、分子中に水酸基を 4 ~ 1 0 個有し、エポキシ基を 3 ~ 8 個有し、また、水酸基価が 1 0 ~ 1 5 0 m g K O H / g であり、エポキシ当量が 2 0 0 ~ 6 0 0 である。なお、水酸基価及びエポキシ当量は、固形分換算の値である。

【 0 0 5 2 】

上記エポキシ基としては、その他のラジカル重合性単量体（ⅠⅠⅠ-c）中に、（メタ）アクリル酸グリシジル、3，4-エポキシシクロヘキサニルメチルメタクリレート等のエポキシ基を含有する単量体を使用して共重合することにより導入することができる。

## 【0053】

上記加水分解性シリル基含有樹脂（ⅠⅠⅠ）の配合量は、本発明の上塗り塗料組成物の樹脂固形分に対し、1～50重量%である。好ましくは5～30重量%である。1重量%未満だと高湿度条件下で塗膜にワレが発生し、低湿度条件下で塗膜が白濁したり耐水テスト後に白化する。50重量%を越えると塗膜の可とう性が低下する。

## 【0054】

本発明の上塗り用塗料組成物に含まれるシリケートグラフト樹脂（ⅠⅤ）は、上記加水分解性シリル基含有樹脂（ⅠⅠⅠ）にシリケート化合物（ⅠⅠ）をグラフトしてなるものである。上記シリケート化合物（ⅠⅠ）は、1種のものを用いてもよく、2種以上のものを併用してもよい。また、シリケート化合物（ⅠⅠ）を単独で用いる場合と同じものであっても良いし、違うものを用いても良い。

## 【0055】

本発明においては、上記したシリケート化合物（ⅠⅠ）及び加水分解性シリル基含有樹脂（ⅠⅠⅠ）の代わりにシリケートグラフト樹脂（ⅠⅤ）を用いることができ、また、これら（ⅠⅠ）、（ⅠⅠⅠ）及び（ⅠⅤ）を併用することもできる。

## 【0056】

上記グラフト反応の方法としては、特に限定されず通常の方法により行うことができ、例えば、無溶媒で行ってもよく、有機溶媒中に行ってもよい。上記有機溶媒としては、特に限定されず、例えば、酢酸エチル、酢酸ブチル等のエステル類；アセトン、メチルエチルケトン等のケトン類；テトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテル類等；トルエン、キシレン、ソルベッソ100（エッソ社製芳香族系炭化水素溶剤）等の芳香族系炭化水素が挙げられる。

## 【0057】

上記グラフト反応における反応温度及び反応時間は、原料の種類によっても異なるが、通常、室温～150℃で、24時間以内の範囲であることが好ましい。反応温度が室温より低いと、シリケート化合物（II）が十分にグラフトされず、150℃を超えるか又は24時間を超えると、シリケート化合物（II）同士の縮合が生じる。

## 【0058】

上記シリケート化合物（II）のグラフト量は、上述した樹脂成分全量に対して、上記シリケート化合物（II）の量として0.5～50重量%である。上記シリケート化合物（II）の量が0.5重量%未満であると、塗膜の親水性の発現が充分ではなく、耐汚染性が低下し、50重量%を超えると、塗膜の可とう性が低下するほか、シリケートグラフト樹脂（IV）の貯蔵安定性が低下する恐れがある。

## 【0059】

本発明の上塗り用塗料組成物におけるシリケートグラフト樹脂（IV）の配合量は、樹脂成分全量に対し2～90重量%で、特に40～90重量%が好ましい。上記シリケートグラフトアクリル共重合体（IV）の配合量が2重量%未満であると、高湿度条件で塗膜にワレが発生し、低湿度条件で塗膜が白濁したり、耐水テスト後に白化する。90重量%を超えると、塗膜の可とう性が低下する。なお、上記重量%は、固形分換算の値である。

## 【0060】

また、上記上塗り塗料組成物には、架橋密度を上げ、耐水性の向上を図るためのメラミン・ホルムアルデヒド樹脂、塗膜の耐候性向上のための紫外線吸収剤や光安定剤等、レオロジーコントロールのためのマイクロジェルや表面調整剤、粘度調整等のための希釈剤等を配合してもよい。

## 【0061】

上記紫外線吸収剤、光安定剤としては特に限定されず、例えば、チヌピン-900（チバスペシャリティーケミカル社製）、サノールLS-292（三共社製）等が挙げられる。上記希釈剤としては特に限定されず、例えば、ハイドロカーボン、エステル等の溶剤が挙げられる。これらは単独で用いてもよく、2種以上

を併用してもよい。

【0062】

上記自動車塗料組成物は、着色顔料を含有することができる。上記顔料としては特に限定されず、例えば、酸化鉄、酸化鉛、カーボンブラック、コールドアスト、二酸化チタン、タルク、硫酸化バリウム、カドミウムイエロー、カドミウムレッド、クロムイエロー、金属顔料（例えば、アルミナフレーク、アルミニウムフレーク等）、有機顔料（例えば、フタロシアニンブルー、シンカシヤレッド等）、パールマイカ等が挙げられる。これらは単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

【0063】

上記上塗り塗料組成物の固形分含有量は、25～70重量%であり、好ましくは35～65重量%である。また、塗布時における固形分含有量は、15～65重量%であり、好ましくは30～60重量%である。

【0064】

上記上塗り塗料組成物の調製法としては特に限定されず、上述した各配合物を攪拌機等により攪拌することにより行うことができ、上記顔料を含む場合は、ニーダー、ロール等を用いて混練することにより行うこともできる。また、上記シリケート化合物（II）あるいは上記シリケート化合物（II）をグラフトしてなる樹脂（IV）を、塗布する前に塗料中に添加して混合してもよく、塗料を製造する段階で、予め塗料中に添加して混合しておいてもよい。予め、塗料中に添加して混合しておく場合には、加水分解や縮合反応が進行しないように、水が混入しない条件で保管しておくことが好ましい。

【0065】

上記上塗り塗料組成物が、室温でも硬化可能であるが、その場合は、塗布を行う前には、室温で硬化が進行しないような状態にしておくことが好ましく、具体的には、塗膜形成性樹脂（I）成分が水酸基含有樹脂とポリイソシアネート化合物とを含有する場合には、水酸基含有樹脂とポリイソシアネート化合物とを分離した状態で保管しておくことが好ましい。

【0066】

また、この場合、硬化を促進するために、水酸基含有樹脂側に有機スズ化合物などのウレタン硬化を促進するための触媒を共存させ、ポリイソシアネート化合物側にシリケート化合物（I I）を混合させておくことが好ましい。更に、シリケートグラフト樹脂（I V）を用いる場合には、これを別にした状態で保管しておくことが好ましい。

#### 【0067】

本発明の塗料組成物は、それぞれの成分を混合して、基材に塗布することにより塗膜を形成するものである。本発明で得られる塗膜が、仕上がり外観、耐汚染性に優れていることを考慮すると、自動車の上塗り用として用いることが好ましい。その中でも自動車の補修用塗料およびプラスチック用塗料に適している。

#### 【0068】

上記上塗り塗料組成物は、スプレー塗装、刷毛塗り塗装、浸漬塗装、静電塗装、ロール塗装、流れ塗装等により塗装することができる。特にスプレー塗装が好ましい。また、約5～200  $\mu\text{m}$ の膜厚で塗布することができる。

#### 【0069】

#### 【実施例】

以下に実施例を掲げて本発明を更に詳しく説明するが、本発明はこれら実施例のみに限定されるものではない。

#### 製造例

##### シリケート化合物A

エチルシリケート40（コルコート社製、平均分子量745、1分子当たりのエトキシ基の数は12個）を595.2g（0.8モル）にブチルセロソルブ284.5g（2.4モル）及び酢酸6.6gを加え、90℃で1時間、120℃で2時間、更に140℃で2時間かけ、生成したエタノールを除きながら反応した。冷却後、減圧濃縮によって酢酸を除き、ブチルセロソルブ置換エチルシリケート641.8gを得た。

#### 【0070】

##### シリケート化合物B

MKCシリケート MS-56（三菱化学社製、平均分子量1500、1分子

当たりのメトキシ基の数は22個)を630.0g(0.6モル)にブチルセロソルブ283.2g(2.4モル)を加え、120℃で3時間、生成したメタノールを除きながら反応した。冷却後、ブチルセロソルブ置換メチルシリケート704.4gを得た。

【0071】

#### シリケート化合物C

MKCシリケート MS-56(三菱化学社製、平均分子量1500、1分子当たりのメトキシ基の数は22個)を735.0g(0.7モル)にエタノール161.0g(3.5モル)及びトリエチルアミン2.02g(0.62モル)を加え、75℃加熱環流下で5時間反応させた後、120℃に昇温し2時間、メタノール、トリエチルアミンを留去した。冷却後、エチル置換メチルシリケート746.0gを得た。

【0072】

#### 加水分解性シリル基含有樹脂D

温度計、攪拌機、冷却管、窒素導入管および滴下ロートを備えた1Lの反応槽に、ソルベッソ100を260重量部、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート25重量部を仕込み125℃に昇温した。この反応槽に滴下ロートを用い、メタクリル酸nブチル100重量部、スチレン100重量部、メタクリル酸イソブチル122重量部、γ-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン50重量部、アクリル酸-4-ヒドロキシブチル128重量部およびt-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート55重量部とソルベッソ100を55重量部とからなる溶液を3時間かけて滴下した。滴下終了後30分間にわたり125℃で保持した後、t-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート5重量部とキシレンを10重量部とからなる溶液を30分間で滴下した。この滴下後、更に1時間、125℃にて反応を継続させ、数平均分子量3000、水酸基価100mg KOH/g(固形分換算)の加水分解性シリル基含有樹脂Dを含む不揮発分59%のワニスを得た。

【0073】

#### 加水分解性シリル基含有樹脂E

温度計、攪拌機、冷却管、窒素導入管および滴下ロートを備えた 1 L の反応槽に、キシレン 1 2 5 重量部、酢酸ブチル 1 6 0 重量部を仕込み 1 2 5℃ に昇温した。この反応槽に滴下ロートを用い、メタクリル酸グリシジル 1 9 0 重量部、スチレン 1 0 0 重量部、 $\gamma$ -メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン 1 4 6 重量部、アクリル酸-4-ヒドロキシブチル 6 4 重量部および  $t$ -ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート 5 5 重量部と酢酸ブチル 5 5 重量部とからなる溶液を 3 時間かけて滴下した。滴下終了後 3 0 分間にわたり 1 2 5℃ で保持した後、 $t$ -ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート 5 重量部とキシレン 1 0 重量部とからなる溶液を 3 0 分間で滴下した。この滴下後、更に 1 時間、1 2 5℃ にて反応を継続させ、数平均分子量 3 5 6 0、エポキシ当量 1 5 0（固形分換算）、水酸基価 5 0 m g K O H / g（固形分換算）の加水分解性シリル基含有樹脂 E を含む不揮発分 5 9 % のワニスを得た。

【0 0 7 4】

シリケートグラフト樹脂 F

温度計、攪拌機、冷却管及び窒素導入管を備えた 1 L の反応槽の内部を窒素ガスで置換し、ブチルセロソルブ置換メチルシリケート B を 6 0 重量部、加水分解性シリル基含有樹脂 D を 4 0 0 重量部、およびオルト酢酸トリメチル 5 重量部を加えて 1 1 0℃ で 3 時間グラフト反応を行い、シリケート化合物をグラフトしたシリケートグラフト樹脂 F を含む不揮発分 6 4 % のワニスを得た。

【0 0 7 5】

シリケートグラフト樹脂 G

温度計、攪拌機、冷却管、窒素導入管を備えた 1 L の反応槽の内部を窒素ガスで置換し、ブチルセロソルブ置換メチルシリケート B を 9 8 重量部、加水分解性シリル基含有樹脂 E を 2 9 7 重量部、酢酸ブチル 5 7 重量部およびオルト酢酸トリメチル 4 重量部を加えて 1 1 0℃ で 4 時間グラフト反応を行い、シリケート化合物をグラフトしたシリケートグラフト樹脂 G を含む不揮発分 6 0 % のワニスを得た。

【0 0 7 6】

実施例 1

表 1 に示した樹脂成分（固形分で示す）に、シリケート化合物 A を 1 0 重量部、加水分解性シリル基含有樹脂 D を 5 重量部、水酸基含有アクリル樹脂を 4 9 重量部及びマイテック N Y - 2 1 5 A （三菱化学社製 I P D I 系ポリイソシアネート）を 4 6 重量部、チヌビン 9 0 0 （チバスパシヤリティーケミカル社製紫外線吸収剤）2 重量部、サノール L S - 4 4 0 （三共社製光安定化剤）1 重量部及びモダフロー（モンサント社製表面調整剤）0. 1 重量部をディスパー攪拌しながら配合して、クリアー塗料を作成した。次いで、得られたクリアー塗料を、日ペ 5 0 0 スタダードシンナー（日本ペイント社製）で、粘度 1 3 秒（フォードカップ N o. 4、2 0 ℃）に希釈した。

## 【 0 0 7 7 】

リン酸処理鋼板に日本ペイント社製カチオン電着塗料パワートップ V - 2 0 及びポリエステル・メラミン型グレー中塗り塗料オルガ T O H - 8 7 0 （いずれも商品名）を、それぞれ、乾燥膜厚が 2 0  $\mu$  m 及び 3 0  $\mu$  m になるように塗装して加熱硬化させた後、# 2 4 0 0 のサンドペーパーで研ぎ、石油ベンジンで拭いて脱脂し、テスト用基材とした。

## 【 0 0 7 8 】

次いで、希釈したクリアー塗料を温度 2 0 ℃、湿度 7 0 % の条件下で、乾燥膜厚が 3 0  $\mu$  m になるようにスプレー塗布し、6 0 ℃で 4 0 分間焼付け乾燥を行い、クリアー塗膜を得た。

更にまた、上記同様にして湿度 9 0 %、5 0 % の条件下で、クリアー塗料を塗装し、得られた塗膜の外観及び性能を評価した。結果を表 1 に示す。

## 【 0 0 7 9 】

評価方法

## （1）外観評価

得られた塗膜の外観を目視により評価した。評価基準は以下の通りである。

○；平滑性が良好で、濁りがない

濁り； 塗膜が濁っている

ワレ； 塗面にワレが発生している。

## 【 0 0 8 0 】



## (2) 耐水性試験

得られた硬化塗膜を 4 0 ℃ の温水中に 1 0 日間浸漬した後、塗膜表面を以下の基準により目視評価した。

○：変化なし

△：かすかに白化が見られる

×：ブリストアおよび白化等の異常が認められる

【0 0 8 1】

## (3) 塗膜の水接触角測定法

材料表面の物性として静的接触角を自動接触角計 C A - Z (協和界面化学製) を用いて、試料に水滴を滴下してから 3 0 秒後の測定を 5 回繰り返して測定し、その上下の数値を削除した平均を求めた。数値が小さいほど親水性が高く、耐汚染性が良好である。

【0 0 8 2】

## (4) 耐汚染性

日本ペイント寝屋川事業所・南向き 3 0 度の角度に試験板 (白色の上塗り塗膜上に本発明のクリアー塗料を塗装・焼き付けしたもの) を設置し、暴露した。それぞれ 1 ケ月、6 ケ月暴露後に水接触角および控え板との明度差 ( $\Delta L$ ) を測定した。 $\Delta L$  の数値が小さい程、耐汚染性に優れていることを示している。

【0 0 8 3】

## (5) ポリッシュ部の水接触角

上記と同じ試験板 (白色の上塗り塗膜上に本発明のクリアー塗料を塗装・焼き付けしたもの) の表面を # 2 4 0 0 のサンドペーパーで研ぎ、さらに # 4 0 0 0 で研いだものを同じ場所に暴露した。6 ケ月後に水接触角を測定した。

【0 0 8 4】

## 実施例 2 ～ 7 及び比較例 1 ～ 3

表 1 に示した樹脂成分 (固形分で示す) に、実施例 1 と同様に、クリアー塗料を得た。次いで、同様にクリアー塗膜を作成し、得られた塗膜を評価した。その結果を表 1 に記載した。

【0 0 8 5】

【表1】

|       |                         | 実施例  |      |      |      |      |   | 比較例   |       |       |
|-------|-------------------------|------|------|------|------|------|---|-------|-------|-------|
|       |                         | 1    | 2    | 3    | 4    | 5    | 6 | 1     | 2     | 3     |
| 配 合   | シケート化合物                 | 10   |      |      |      |      |   | 10    |       |       |
|       | A                       |      |      |      |      |      |   |       |       |       |
|       | B                       |      | 20   |      |      |      |   |       | 20    |       |
|       | C                       |      |      |      |      |      |   |       |       |       |
|       | 加水分解性                   | 5    |      | 30   |      |      |   |       |       |       |
|       | シリル含有樹脂                 |      | 20   | 30   |      |      |   |       |       |       |
|       | シケートラフト樹脂               |      |      |      | 56   |      |   |       |       |       |
|       | G                       |      |      |      |      | 125  |   |       |       |       |
|       | 有機塗膜                    | 49   | 42   | 37   | 29   |      |   | 49    | 42    | 52    |
|       | 形成成分                    | 46   | 38   | 33   | 35   | 21   |   | 46    | 38    | 48    |
| 外 観   | 樹脂成分全量に対するシケート量(%)      | 10   | 20   | 30   | 20   | 46   |   | 10    | 20    | 0     |
|       | ” に対する加水分解性シリル基含有樹脂量(%) | 5    | 20   | 30   | 0    | 0    |   | 0     | 0     | 0     |
|       | ” に対するシケートラフト樹脂量(%)     | 0    | 0    | 0    | 47   | 86   |   | 0     | 0     | 0     |
|       | 塗膜外観                    | 〇    | 〇    | 〇    | 〇    | 〇    |   | 〇     | 〇     | 〇     |
|       | 湿度90%                   | 〇    | 〇    | 〇    | 〇    | 〇    |   | 〇     | 〇     | 〇     |
|       | 湿度70%                   | 〇    | 〇    | 〇    | 〇    | 〇    |   | 〇     | 〇     | 〇     |
|       | 湿度50%                   | 〇    | 〇    | 〇    | 〇    | 〇    |   | 〇     | 〇     | 〇     |
|       | 性能                      | 〇    | 〇    | 〇    | 〇    | 〇    |   | 〇     | 〇     | 〇     |
|       | 耐水性                     | 〇    | 〇    | 〇    | 〇    | 〇    |   | 〇     | 〇     | 〇     |
|       | 初期                      | 82   | 78   | 75   | 76   | 75   |   | 77    | 76    | 85    |
| 外 包 口 | 1ヶ月                     | -0.3 | -0.2 | -0.1 | -0.2 | -0.1 |   | -0.5  | -0.3  | -3.2  |
|       | 6ヶ月                     | 39   | 31   | 31   | 33   | 34   |   | 37    | 35    | 83    |
|       | 耐汚染性                    | -0.4 | -0.2 | -0.3 | -0.4 | -0.5 |   | -0.8  | -0.5  | -15.6 |
|       | 水接触角                    | 35   | 30   | 28   | 30   | 29   |   | 33    | 28    | 78    |
|       | 耐汚染性                    | -1.8 | -1.0 | -0.9 | -0.9 | -0.8 |   | -12.5 | -10.1 | -14.6 |
|       | 水接触角                    |      |      |      |      |      |   |       |       |       |
|       | ポリジメチルシリル部の耐汚染性         |      |      |      |      |      |   |       |       |       |
|       | ポリジメチルシリル部の耐汚染性         |      |      |      |      |      |   |       |       |       |
|       | ポリジメチルシリル部の耐汚染性         |      |      |      |      |      |   |       |       |       |
|       | ポリジメチルシリル部の耐汚染性         |      |      |      |      |      |   |       |       |       |

\*1 三菱レーヨン社製、ダイナールR2562(OHV=166、数平均分子量=4000、不揮発分=61%)

\*2 三菱化学社製、マイテックNY-215A(不揮発分=75%)

【0086】

表 1 から明らかなように、実施例で得たクリヤー塗料は、塗装時の湿度環境にかかわらず外観に優れた塗膜が得られ、またバクロ時の耐汚染性に優れた塗膜を得ることができる。その硬化塗膜は、1ヶ月暴露後、6ヶ月暴露後の水接触角が低く、一般部の塗膜表面が十分な親水性を示し、耐汚染性が優れ、更にそのうえに、ポリッシュ部の塗膜表面の耐汚染性にも優れている。

【0087】

一方、比較例で得たクリヤー塗料は、塗膜外観、耐水性に劣った。更に、6ヶ月曝露後のポリッシュ部の水接触角が大きく、塗膜表面が十分な親水性を示さず、耐汚染性が劣っていた。

【0088】

【発明の効果】

本発明の上塗り塗料組成物は、上述の構成よりなるので、その硬化塗膜は、塗装時の湿度環境にかかわらず塗膜外観、耐候性、耐汚染性に優れ、一般部及びポリッシュ部の塗膜表面が高い親水性を有するために洗車フリーで美粧性を維持しつつ、優れた耐水性を有している。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 塗装時の湿度環境にかかわらず外観に優れた塗膜が得られ、耐候性、耐汚染性に優れた上塗り用塗料組成物を提供する。

【解決手段】 塗膜形成性樹脂（Ⅰ）と、シリケート化合物（ⅠⅠ）及び加水分解性シリル基含有樹脂（ⅠⅠⅠ）および／または加水分解性シリル基含有樹脂（ⅠⅠⅠ）にシリケート化合物（ⅠⅠ）をグラフトしてなるシリケートグラフト樹脂（ⅠⅤ）とを含有する上塗り用塗料組成物。

【選択図】 なし

認 定 ・ 付 加 情 報

|         |                          |
|---------|--------------------------|
| 特許出願の番号 | 特願 2 0 0 0 - 1 3 5 5 4 8 |
| 受付番号    | 5 0 0 0 0 5 6 9 2 2 3    |
| 書類名     | 特許願                      |
| 担当官     | 第四担当上席 0 0 9 3           |
| 作成日     | 平成 1 2 年 5 月 1 7 日       |

< 認定情報・付加情報 >

|       |             |
|-------|-------------|
| 【提出日】 | 平成12年 5月 9日 |
|-------|-------------|

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号                    [000230054]

|          |                    |
|----------|--------------------|
| 1. 変更年月日 | 1990年 8月 6日        |
| [変更理由]   | 新規登録               |
| 住 所      | 大阪府大阪市北区大淀北2丁目1番2号 |
| 氏 名      | 日本ペイント株式会社         |